

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 10 月 7 日 (07.10.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/086025 A1

- (51) 国際特許分類⁷: G01N 27/414, H01L 29/80
(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/004196
(22) 国際出願日: 2004 年 3 月 25 日 (25.03.2004)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願2003-082986 2003 年 3 月 25 日 (25.03.2003) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 独立
行政法人科学技術振興機構 (JAPAN SCIENCE AND
TECHNOLOGY AGENCY) [JP/JP]; 〒332-0012 埼玉
県 川口市 本町四丁目 1 番 8 号 Saitama (JP).
(72) 発明者; および
(73) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 川原田 洋

(KAWARADA, Hiroshi) [JP/JP]; 〒224-0001 神奈川県
横浜市 都筑区中川二丁目 9 番 8-405 号 Kanagawa
(JP).

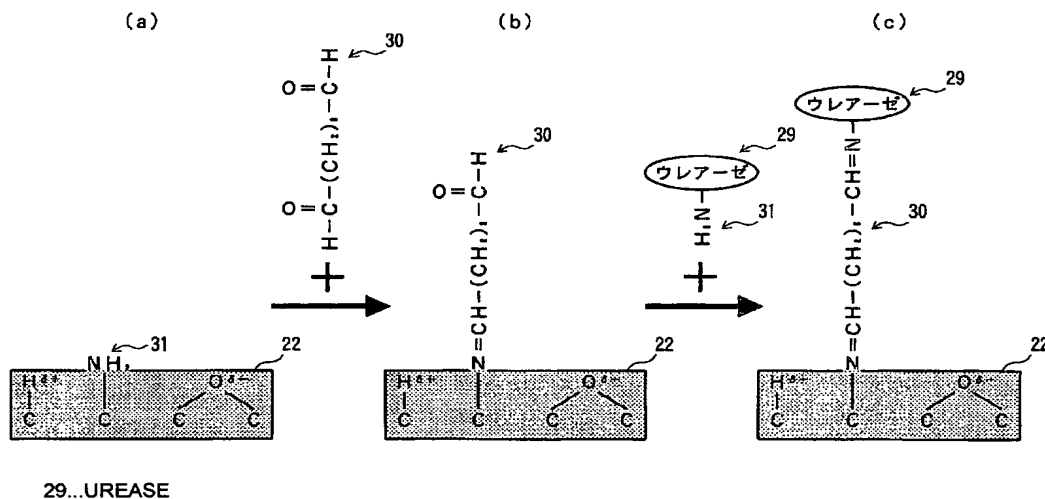
(74) 代理人: 清水 守 (SHIMIZU, Mamoru); 〒101-0053 東京
都 千代田区 神田美土代町 7 番地 10 大園ビル
Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が
可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR,
BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,
ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT,
LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI,
NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG,
SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ,
VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: p CHANNEL FILED EFFECT TRANSISTOR AND SENSOR USING THE SAME

(54) 発明の名称: p チャンネル電界効果トランジスタ及びそれを用いたセンサ



(57) Abstract: It is intended to provide a p channel filed effect transistor in which the sensitivity of an enzyme can be enhanced by immobilizing the enzyme directly on an FET channel surface (diamond surface), and a sensor using the same. A diamond surface (22) having a mixture of hydrogen terminals, oxygen terminals and amino terminals is treated with glutaraldehyde $\text{OHC}(\text{CH}_2)_3\text{CHO}$ (30) so that the glutaraldehyde (30) is immobilized on the diamond surface (22) having a mixture of hydrogen terminals, oxygen terminals and amino terminals. Then it is treated with urease (29) so that the amino group (31) of the urease (29) is bonded to the glutaraldehyde (30). That is, the urease (29) can be immobilized to the diamond surface (22) having a mixture of hydrogen terminals, oxygen terminals and amino terminals. With an increase in the urea concentration from 10^{-6}M to 10^{-2}M , the threshold voltage shifts in the positive direction by about 0.1 V, thus showing sensitivity to urea concentration of 30 mV/decade.

(57) 要約: 酵素をFETチャンネル表面(ダイヤモンド表面)に直接固定することにより、酵素の感応性を向上させることができるpチャンネル電界効果トランジスタ及びそれを用いたセンサを提供

[続葉有]



- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

する。水素終端、酸素終端、アミノ終端が混在したダイヤモンド表面(22)上にグルタルアルデヒド $\text{OHC}(\text{CH}_2)_3\text{CHO}$ (30)を作用させて処理すると、水素終端、酸素終端、アミノ終端が混在したダイヤモンド表面(22)上にグルタルアルデヒド(30)が固定される。そこへ、ウレアーゼ(29)を作用させると、グルタルアルデヒド30にウレアーゼ(29)のアミノ基(31)が結合する。つまり、水素終端、酸素終端、アミノ終端が混在したダイヤモンド表面(22)にウレアーゼ(29)を固定できる。 10^{-6}M から 10^{-2}M まで尿素濃度を増加すると、閾値電圧は正方向に約0.1Vシフトし、30mV/decadeの尿素濃度感応性を示した。

明 細 書

p チャンネル電界効果トランジスタ及びそれを用いたセンサ

技術分野

本発明は、p チャンネル電界効果トランジスタ及びそれを用いたセンサに係り、特に、化学センサ及びバイオセンサに関するものである。

背景技術

本願発明者は、既に、液体電解質をゲートとして使用し、ダイヤモンドの水素終端表面をチャンネルとした電界効果トランジスタを提案している（下記特許文献 1 及び 2 参照）。

ところで、ウレアーゼ（酵素）の触媒作用により、尿素が加水分解し、アンモニアを発生し、p H が上昇することは知られている。シリコン系イオン感応性 FET（ISFET）では、ウレアーゼ（酵素）を保護膜兼感応膜であるシリコン窒化物上に固定し、p H の変化を検出する。この場合、ウレアーゼ（酵素）の固定密度及び固定強度が検出精度を左右する。また、ウレアーゼ（酵素）と ISFET を分離する方法があるが、この場合には、検出感度が低下するという問題があった。

【特許文献 1】

特許第 3 3 1 3 6 9 6 号公報（第 2 - 4 頁 図 1）

【特許文献 2】

特許第 3 3 9 0 7 5 6 号公報（第 2 - 4 頁 図 1）

発明の開示

本発明は、上記状況に鑑みて、酵素を FET チャンネル表面（ダイヤモンド表面）に直接固定することにより、酵素の感応性を向上させることができる p チャンネル電界効果トランジスタ及びそれを用いたセンサを提供することを目的とする。

特に、ウレアーゼをFETチャンネル表面（ダイヤモンド表面）に直接固定することにより、尿素濃度の感応性を向上させることができるpチャンネル電界効果トランジスタ及びそれを用いたセンサを提供することを目的とする。

本発明は、上記目的を達成するために、

〔1〕 pチャンネル電界効果トランジスタにおいて、液体電解質をゲートとして使用し、水素終端、酸素終端及びアミノ終端が混合された多結晶及び単結晶ダイヤモンド表面をチャンネルとした。

〔2〕 上記〔1〕記載のpチャンネル電界効果トランジスタを用いて、前記液体電解質のpHの上昇に対し、前記アミノ終端と酸素終端の混合表面で閾値電圧が正方向にシフトすることにより、pH感応性を有することを特徴とする。

〔3〕 上記〔2〕記載のセンサにおいて、前記pHの上昇が、2から12であることを特徴とする。

〔4〕 上記〔2〕又は〔3〕記載のセンサにおいて、前記表面のアミノ終端にウレアーゼをグルタルアルデヒド（2価のアルデヒド）を介して固定し、尿素濃度の上昇により、閾値電圧が正方向にシフトすることにより、尿素の感応性を示すようにしたことを特徴とする。

〔5〕 上記〔4〕記載のセンサにおいて、前記尿素濃度の上昇が、 10^{-6} Mから 10^{-2} Mであることを特徴とする。

図面の簡単な説明

第1図は、本発明にかかる電解質溶液ゲートダイヤモンドFETの斜視図である。

第2図は、本発明の実施例を示す電解質溶液ゲートダイヤモンドFETの断面図である。

第3図は、本発明にかかるアミノ化された基板のXPS測定結果を示す図である。

第4図は、本発明の実施例を示す電解質溶液ゲート酵素バイオセンサの模式図である。

第5図本発明の実施例を示す部分的にアミノ終端、酸素終端された水素終端ダ

イヤモンド基板のpH感応性を示す図（その1）である。

第6図は、本発明の実施例を示す部分的にアミノ終端、酸素終端された水素終端ダイヤモンド基板のpH感応性を示す図（その2）である。

第7図は、本発明の実施例を示すウレアーゼがアミノ終端されたダイヤモンド表面に固定された溶液ゲート酵素バイオセンサの模式図である。

第8図は、本発明の実施例を示すウレアーゼがアミノ終端されたダイヤモンド表面での作用を示す模式図である。

第9図は、本発明の実施例を示すダイヤモンドウレアセンサのウレア濃度特性図（その1）である。

第10図は、本発明の実施例を示すダイヤモンドウレアセンサのウレア濃度特性図（その2）である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

第1図は本発明にかかる電解質溶液ゲートダイヤモンドFETの斜視図、第2図はその電解質溶液ゲートダイヤモンドFETの断面図である。

この図において、1は多結晶CVDダイヤモンド基板、2はP型表面伝導層、3はソース電極（Au）、4はドレイン電極（Au）、5はソース電極（Au）3を覆うエポキシ樹脂、6はドレイン電極（Au）4を覆うエポキシ樹脂、7は電解質溶液、8はゲート電極（Ag/AgCl参照電極）である。

この電解質溶液ゲートダイヤモンドバイオセンサは、従来のシリコン基板上にソース・ドレインを有するシリコンバイオセンサに比べると、安価な多結晶CVDダイヤモンド基板を用いるため低コスト化を図ることができる。

また、シリコンバイオセンサでは、シリコン窒化物、シリコンダイオキไซด์を通してシグナルが検出されるが、保護膜、感応膜がないダイヤモンドセンサではシグナルを直接検出することができる。そのため、ダイヤモンドセンサではノイズがないシグナルの検出ができる。

また、本発明では、紫外線を用いて水素終端ダイヤモンド表面を改質した。

すなわち、酸素を入れて紫外線を照射すると、オゾンにより水素終端表面が部

分的に酸化され酸素終端になる。また、基板をアンモニア溶液に入れて紫外線を照射すると、水素終端ダイヤモンド表面が部分的にアミノ終端になる。酸素終端とアミノ終端は絶縁性なので、電解質溶液ゲートFETのコンダクタンスが少し下がるが、デバイス動作への影響は少ない。

第3図は本発明にかかるアミノ化された基板のXPS測定結果を示す図である。

これはアンモニア溶液の中に基板を入れて紫外線を照射することにより、アミノ終端された基板のXPS測定結果であり、第3図(a)は炭素、第3図(b)は窒素、第3図(c)は酸素を示している。これらの図において、窒素のピークと酸素のピークが見える。このことより、アンモニア溶液中で基板に紫外線を照射すると、水素終端ダイヤモンド表面が部分的にアミノ終端、酸素終端されることがわかる。なお、これらの図において、縦軸は光電子検出強度(任意単位)、横軸は結合エネルギーである。

第4図は本発明の実施例を示す電解質溶液ゲート酵素バイオセンサの模式図である。

この図において、11は多結晶CVDダイヤモンド基板、12はP型表面伝導層(水素、酸素、アミノ基により終端された基板表面)、13はソース電極(Au)、14はドレイン電極(Au)、15はソース電極(Au)13を覆うエポキシ樹脂、16はドレイン電極(Au)14を覆うエポキシ樹脂、17は電解質溶液、18はゲート電極(Ag/AgCl参照電極)、19は酵素、20は基質である。

上記した方法で水素、酸素、アミノ基により終端された多結晶ダイヤモンド基板11の表面チャンネル12上で、電解質溶液ゲートFETを作製した。

第4図に示したように、P型表面伝導層(水素終端表面の一部がアミノ終端、酸素終端された基板表面)12には酵素19を直接固定することができ、この酵素19に電解質溶液17中の基質20を結合させることができる。

第5図は本発明の実施例を示す部分的にアミノ終端、酸素終端された水素終端ダイヤモンド基板のpH感応性を示す図(その1)であり、第5図(a)はゲート・ソース間電圧 V_{GS} が $-0.7V$ の場合のドレイン・ソース間電圧 V_{DS} に対するドレイン・ソース間電流 I_{DS} の特性図、第5図(b)はドレイン・ソース間電

圧 V_{DS} が -0.1 Vの場合のゲート・ソース間電圧 V_{GS} に対するドレイン・ソース間電流 I_{DS} の特性図である。

これらの場合、pH 2～12の間でpH感应性を示した。

第6図は本発明の実施例を示す部分的にアミノ終端、酸素終端された水素終端ダイヤモンド基板のpH感应性を示す図（その2）であり、この図において、横軸はpHを、縦軸は閾値電圧〔V〕を示している。

これらの図から、部分的にアミノ終端、酸素終端された水素終端ダイヤモンド基板は、pH感应性を有することが分かる。

第7図は本発明の実施例を示すウレアーゼがアミノ終端されたダイヤモンド表面に固定された溶液ゲート酵素バイオセンサの模式図、第8図はそのアミノ終端されたダイヤモンド表面での作用を示す模式図である。

これらの図において、21は多結晶CVDダイヤモンド基板、22は水素終端、酸素終端、アミノ終端が混在したダイヤモンド表面、23はソース電極（Au）、24はドレイン電極（Au）、25はソース電極（Au）23を覆うエポキシ樹脂、26はドレイン電極（Au）24を覆うエポキシ樹脂、27は尿素（ウレア）溶液、28はゲート電極、29は固定されたウレアーゼ、30はグルタルアルデヒド、31はアミノ基である。

第8図（a）に示すように、水素終端、酸素終端、アミノ終端が混在したダイヤモンド表面22上にグルタルアルデヒド $\text{OHC}(\text{CH}_2)_3\text{CHO}$ 30を作用させて処理すると、第8図（b）に示すように、水素終端、酸素終端、アミノ終端が混在したダイヤモンド表面22上のアミノ基31にグルタルアルデヒド30が固定される。そこへ、ウレアーゼ29を作用させると、第8図（c）に示すように、グルタルアルデヒド30にウレアーゼ29のアミノ基31が結合する。つまり、水素終端、酸素終端、アミノ終端が混在したダイヤモンド表面22にウレアーゼ29を固定できる。

第9図は本発明の実施例を示すダイヤモンドウレアセンサのウレア濃度特性図（その1）であり、第9図（a）はゲート・ソース間電圧 V_{GS} が -0.7 Vの場合のドレイン・ソース間電圧 V_{DS} に対するドレイン・ソース間電流 I_{DS} の特性図、第9図（b）はドレイン・ソース間電圧 V_{DS} が -0.1 Vの場合のゲート・ソー

ス間電圧 V_{gs} に対するドレイン・ソース間電流 I_{ds} の特性図である。

第10図は本発明の実施例を示すダイヤモンドウレアセンサのウレア濃度特性図（その2）であり、第10図（a）は尿素の化学的作用（分解）の説明図、第10図（b）は尿素のセンシング特性図であり、横軸に尿素濃度（M）、縦軸に閾値電圧 V_{th} （V）を示している。

第9図に示したように、ウレアーゼが固定されているダイヤモンド電解質溶液ゲートFETでは、尿素濃度が増加するとドレイン電流は増加し、閾値電圧は正方向にシフトする。

第10図（a）に示すように、尿素は水の中でウレアーゼに分解される。その分解過程で、アルカリ性のアンモニア酸と酸性の炭酸が発生する。アルカリ性のアンモニア酸は酸性の炭酸より強いため、ダイヤモンド表面のpHが上がる。pHが増加すると、ダイヤモンド電解質溶液ゲートFETのドレイン電流も増加する。

このように、本発明のダイヤモンドウレアセンサは、そのpH変化を検出する酵素センサである。第10図（b）に示すように、閾値電圧のシフトは約30 mV/decadeである。10⁻⁶Mから10⁻²Mまで尿素濃度を増加すると、閾値電圧は正方向に約0.1 Vシフトし、30 mV/decadeの尿素濃度感応性を示した。

なお、本発明は上記実施例に限定されるものではなく、本発明の趣旨に基づいて種々の変形が可能であり、これらを本発明の範囲から排除するものではない。

以上、詳細に説明したように、本発明によれば、以下のような効果を奏することができる。

（A）酵素をFETチャンネル表面（ダイヤモンド表面）に直接固定することにより、酵素濃度の感応性を向上させることができる。

（B）尿素濃度の簡便な測定は、健康医療で重要である。特に、腎機能の指標として臨床検査に使用される血中尿素の測定などに有用である。

（C）食品検査、特に牛乳中の尿素検査の簡便化を図ることができる。

（D）生化学分析における微量尿素（ μ M）の測定が可能である。

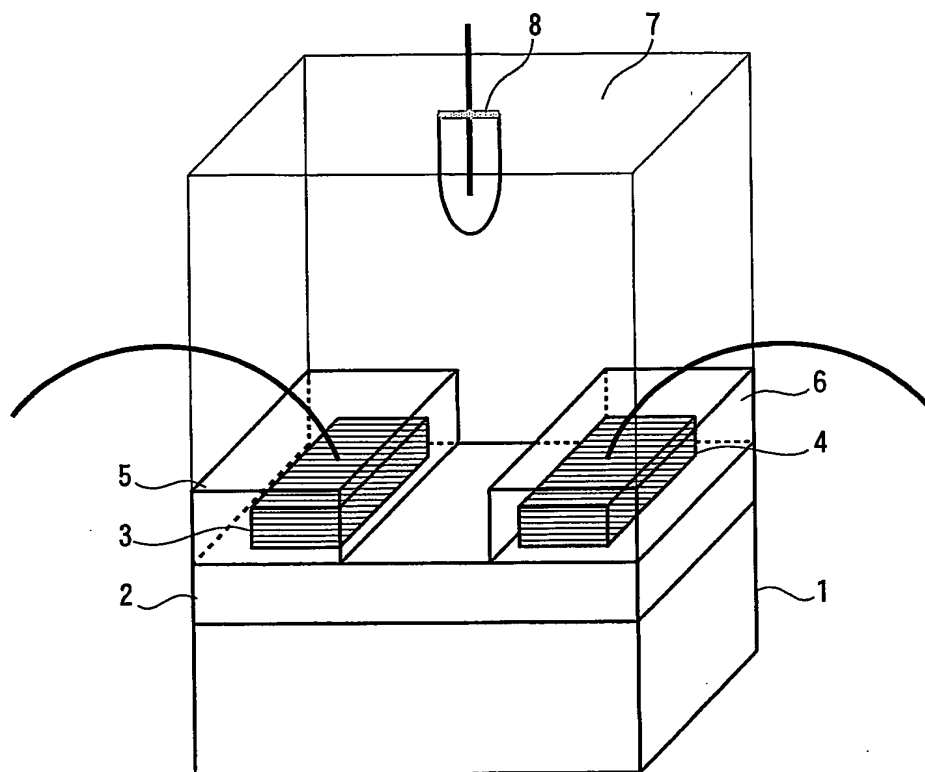
産業上の利用可能性

本発明のpチャンネル電界効果トランジスタ及びそれを用いたセンサは、特に、化学センサ及びバイオセンサに利用可能である。

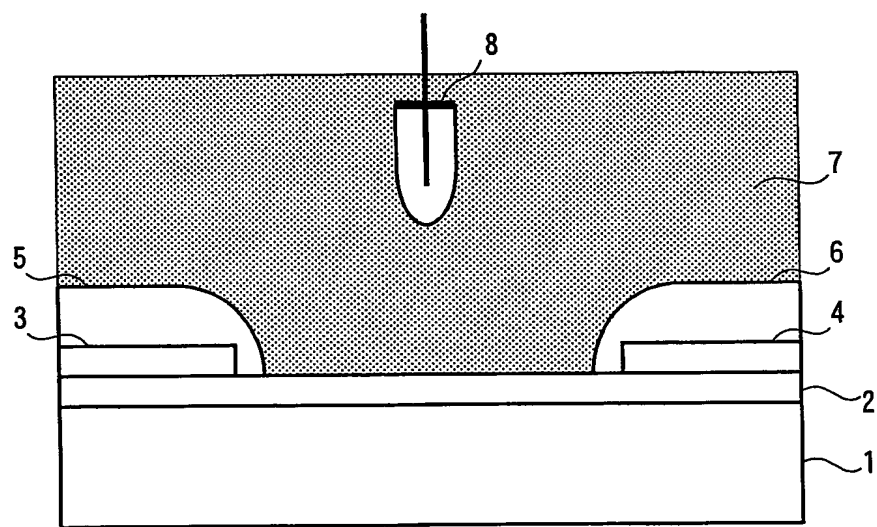
請 求 の 範 囲

1. 液体電解質をゲートとして使用し、水素終端、酸素終端及びアミノ終端が混合された多結晶及び単結晶ダイヤモンド表面をチャンネルとしたpチャンネル電界効果トランジスタ。
2. 請求項1記載のpチャンネル電界効果トランジスタを用いて、前記液体電解質のpHの上昇に対し、前記アミノ終端と酸素終端の混合表面で閾値電圧が正方向にシフトすることにより、pH感応性を有することを特徴とするセンサ。
3. 請求項2記載のセンサにおいて、前記pHの上昇が、2から12であることを特徴とするセンサ。
4. 請求項2又は3記載のセンサにおいて、前記表面のアミノ終端にウレアーゼをグルタルアルデヒド（2価のアルデヒド）を介して固定し、尿素濃度の上昇によって、閾値電圧が正方向にシフトすることにより、尿素の感応性を示すようにしたことを特徴とするセンサ。
5. 請求項4記載のセンサにおいて、前記尿素濃度の上昇が、 10^{-6} Mから 10^{-2} Mであることを特徴とするセンサ。

第 1 図

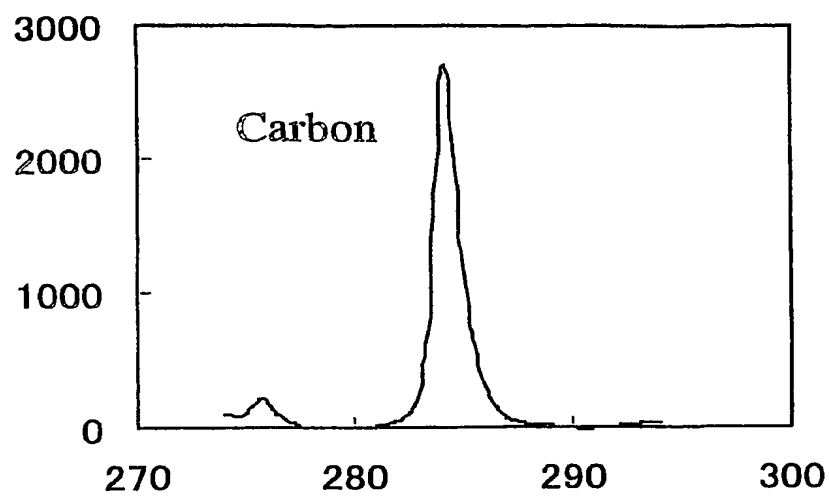


第 2 図

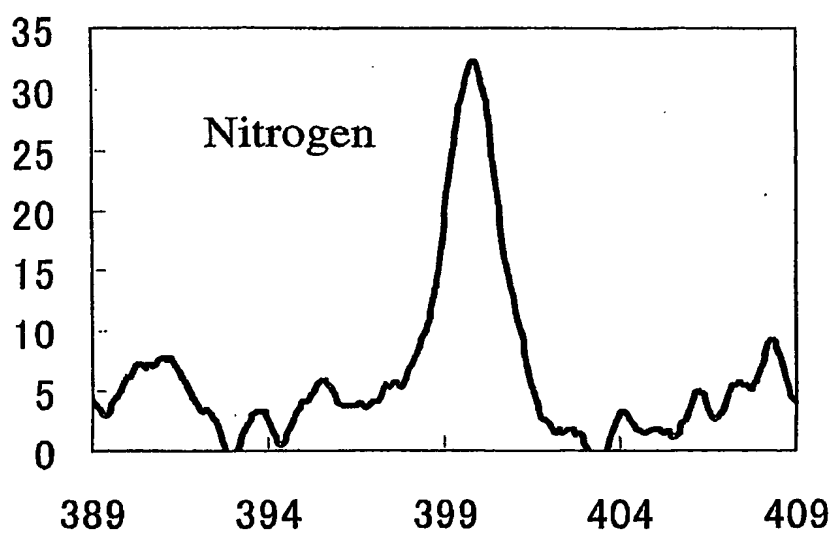


第 3 図

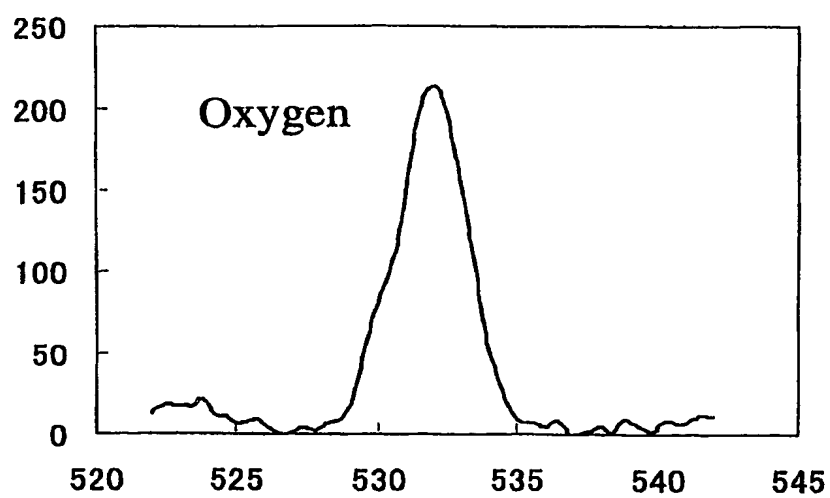
(a)



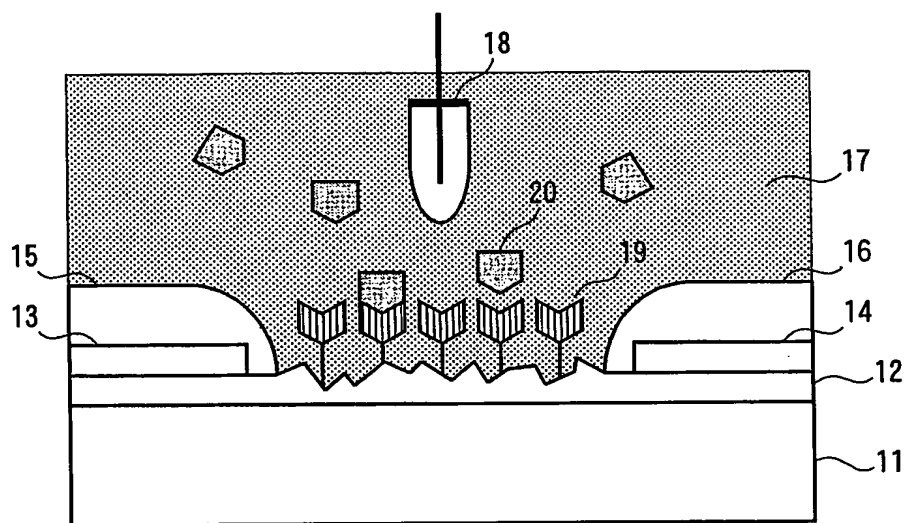
(b)



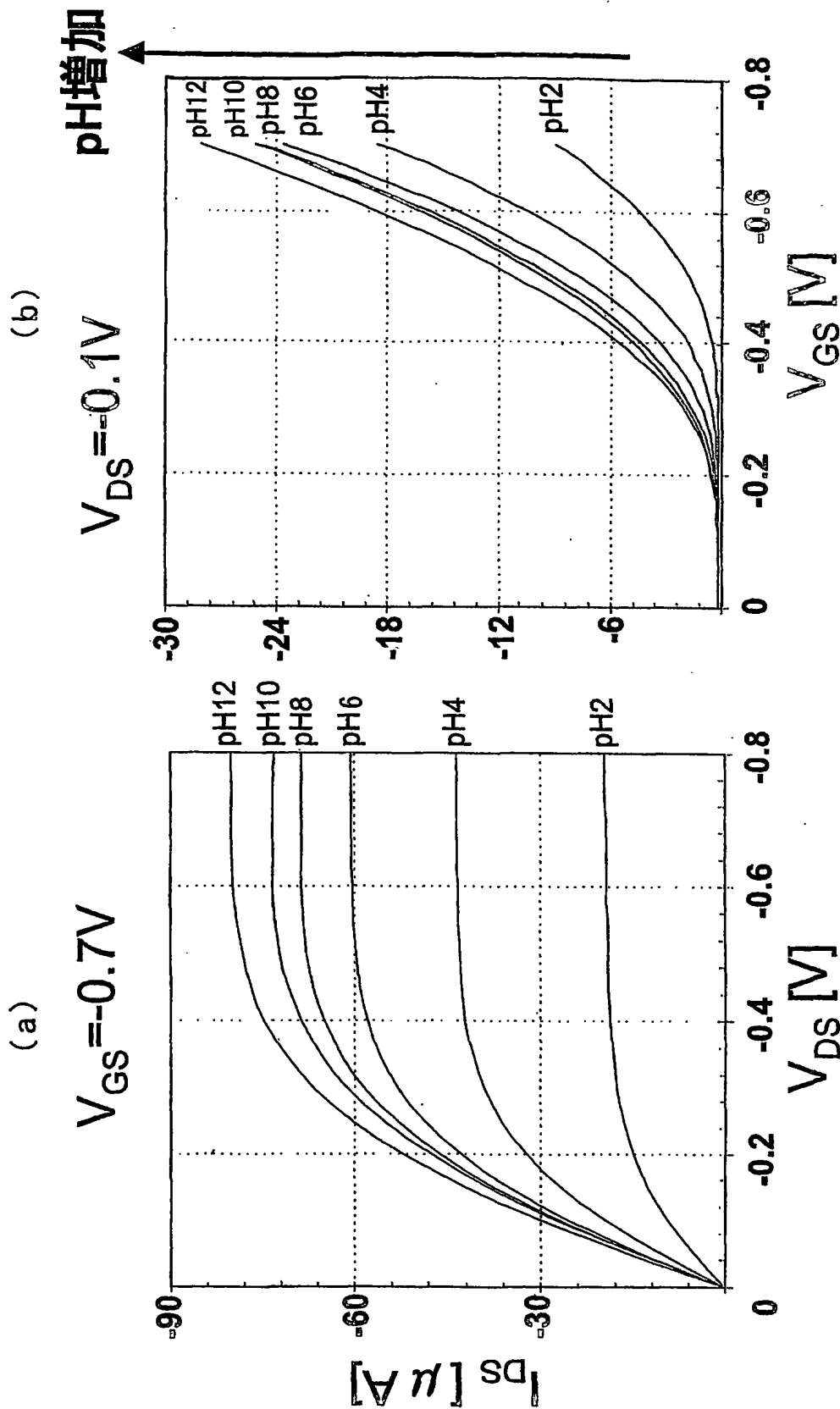
(c)



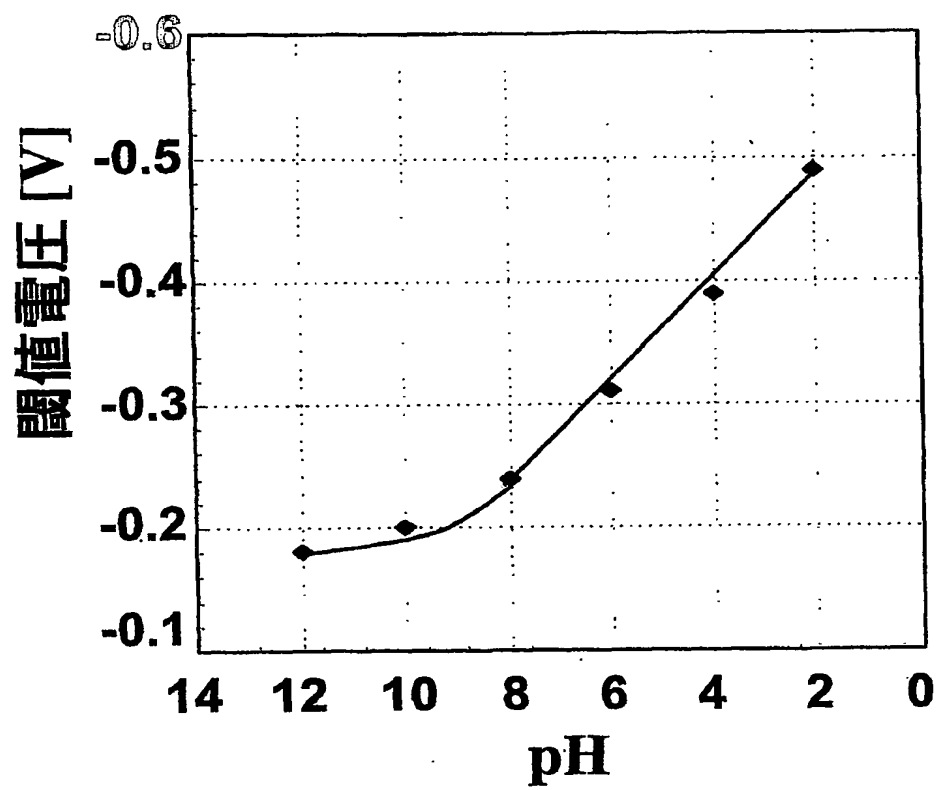
第 4 図



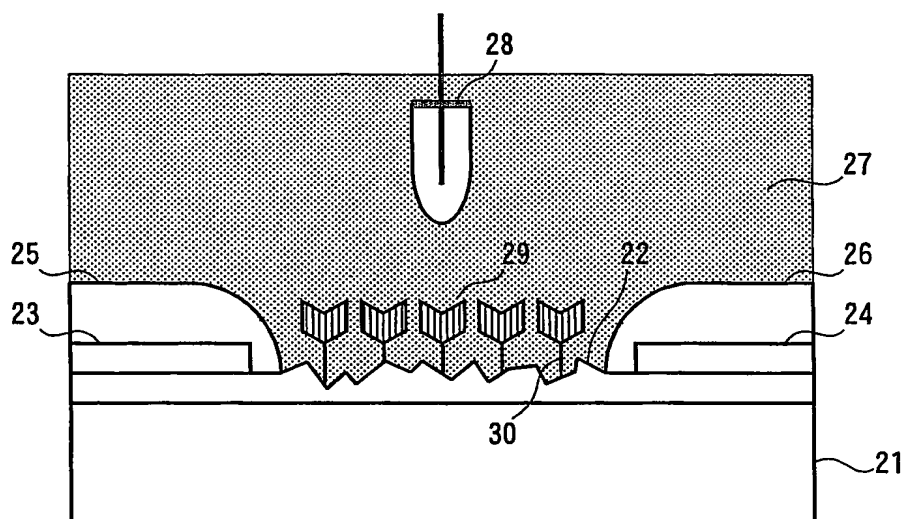
第 5 図



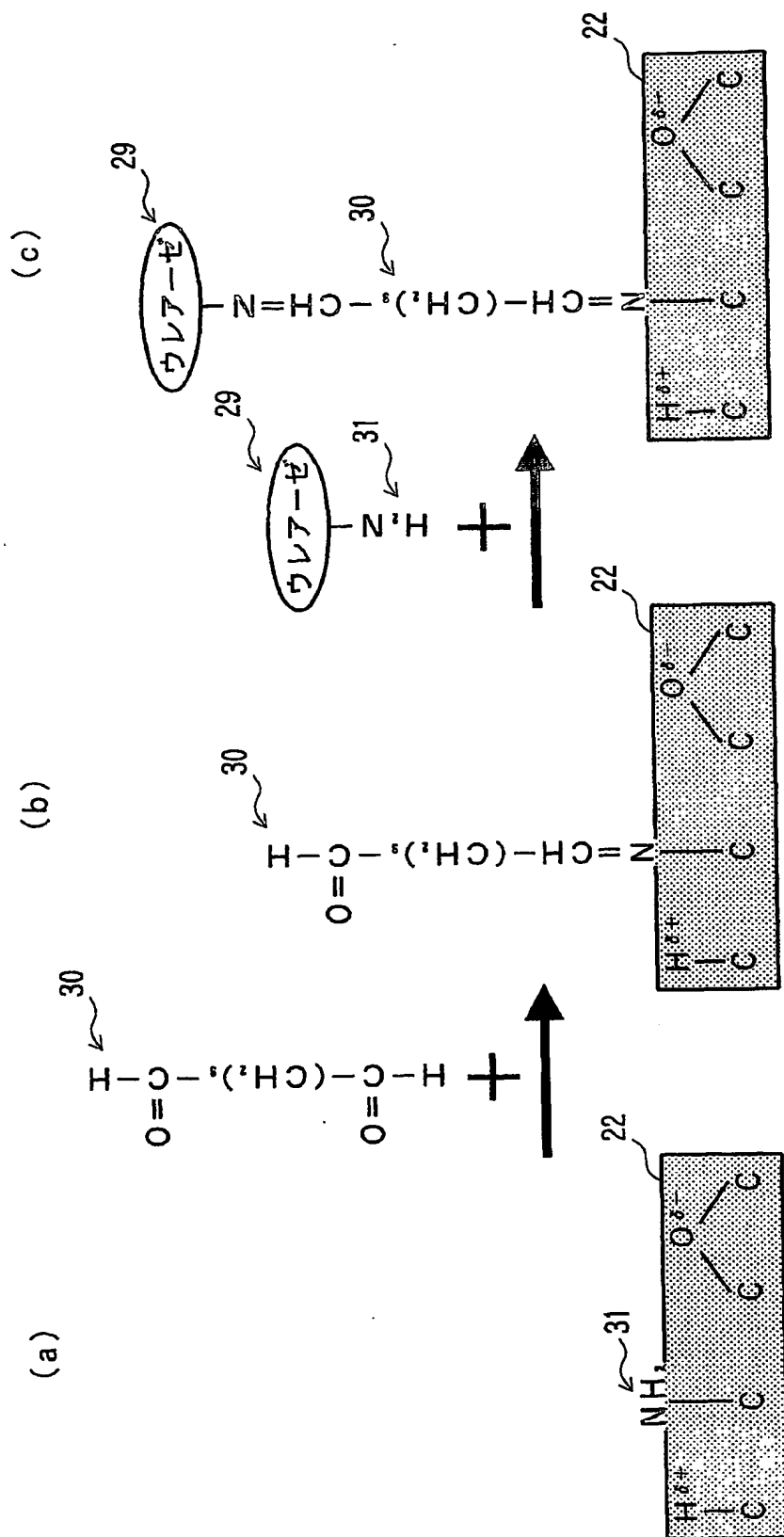
第 6 図



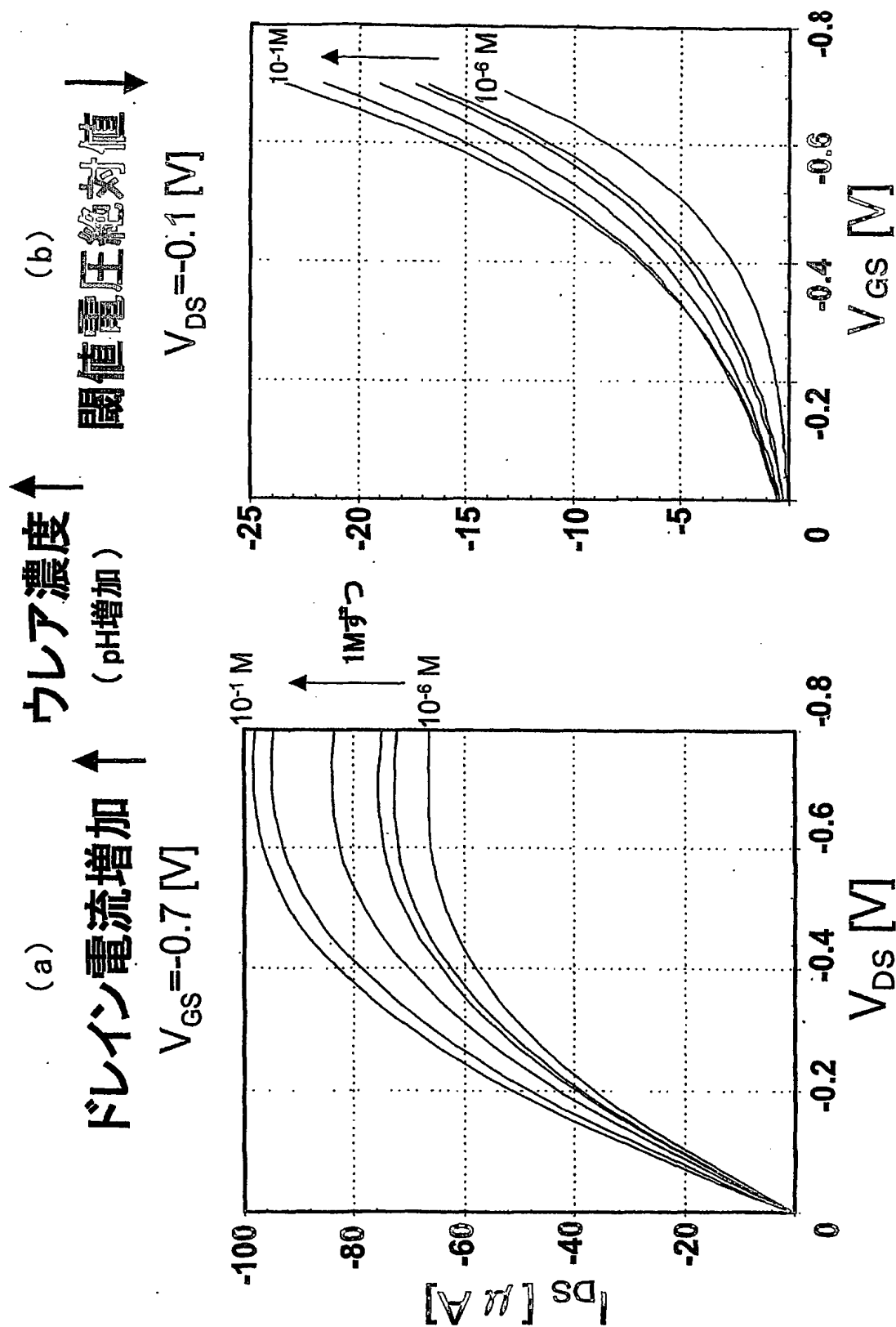
第 7 図



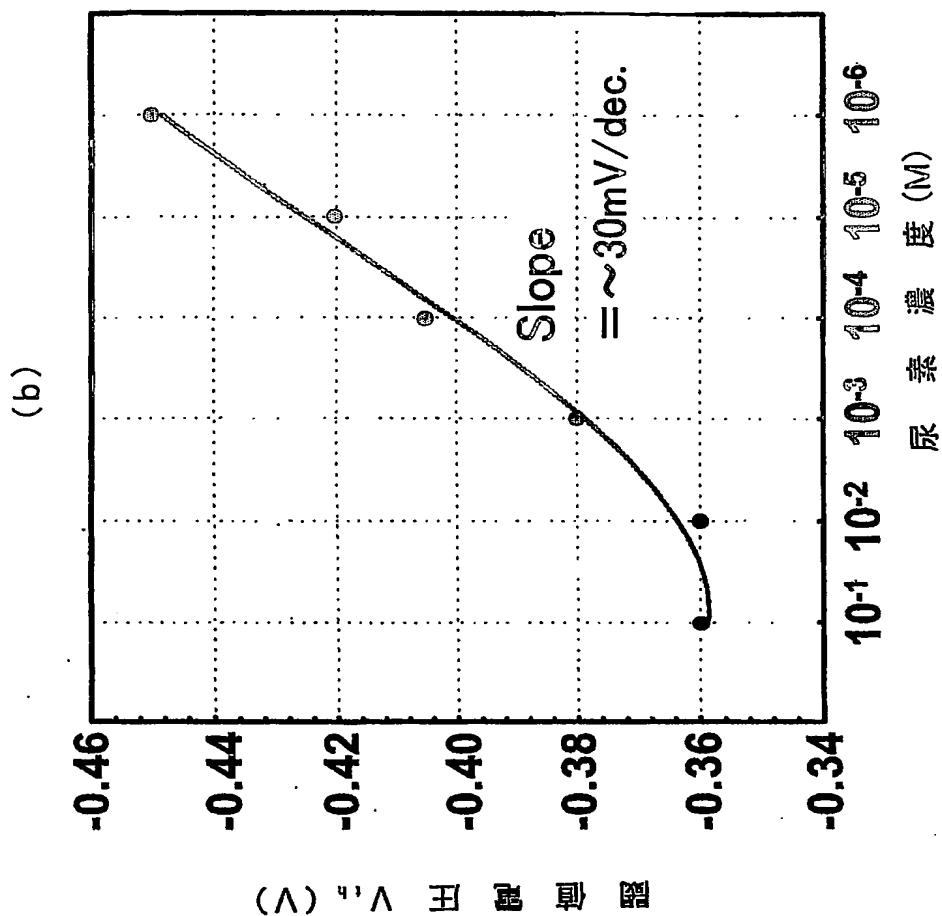
第 8 図



第 9 図



第 10 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/004196

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ G01N27/414, H01L29/80

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ G01N27/26-27/49, H01L29/80

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JICST FILE (JOIS)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-272372 A (Japan Science and Technology Corp.), 05 October, 2001 (05.10.01), Full text; Figs. 1 to 10 & WO 01/73421 A1 & EP 1186885 A1 & US 2002/157949 A1	1-4
A	JP 2002-286692 A (Japan Science and Technology Corp.), 03 October, 2002 (03.10.02), Full text; Figs. 1 to 6 & WO 02/77632 A1	1-4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

26 April, 2004 (26.04.04)

Date of mailing of the international search report

18 May, 2004 (18.05.04)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/004196

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	Yusuke NAKAMURA et al., "Diamond no ISFET eno Ozon Shori no Eikyo", Heisei 14 Nen Dai 16 Kai Diamond Symposium Koen Yoshishu, 25 November, 2002 (25.11.02), pages 210 to 211	1-4
A	JP 8-240555 A (Kobe Steel, Ltd.), 17 September, 1996 (17.09.96), Full text; Figs. 1 to 27 & US 5777372 A1	1-4
E,X E,A	JP 2004-109020 A (Japan Science and Technology Corp.), 08 April, 2004 (08.04.04), Par. Nos. [0052] to [0053]; Fig. 9 Full text; Figs. 1 to 10 (Family: none)	1 2-4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ G01N27/414、H01L29/80		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ G01N27/26-27/49、H01L29/80		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2004年 日本国登録実用新案公報 1994-2004年 日本国実用新案登録公報 1996-2004年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) JICSTファイル (JOIS)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2001-272372 A(科学技術振興事業団) 2001.10.05 全文、第1-10図 & WO 01/73421 A1 & EP 1186885 A1 & US 2002/157949 A1	1-4
A	JP 2002-286692 A(科学技術振興事業団) 2002.10.03 全文、第1-6図 & WO 02/77632 A1	1-4
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 26.04.2004	国際調査報告の発送日 18.5.2004	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 黒田 浩一 電話番号 03-3581-1101 内線 3251	2 J 9 2 1 8

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	中村雄介 他、ダイヤモンドの I S F E T へのオゾン処理の影響、平成 14 年第 16 回ダイヤモンドシンポジウム講演要旨集、平成 14 年 11 月 25 日、P 210-211	1-4
A	JP 8-240555 A(株式会社神戸製鋼所) 1996.09.17 全文、第 1-27 図 & US 5777372 A1	1-4
E, X E, A	JP 2004-109020 A(科学技術振興事業団) 2004.04.08 段落番号【0052】-【0053】、第 9 図 全文、第 1-10 図 (ファミリー無し)	1 2-4